

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2002年10月21日

出 願 番 号

Application Number:

特願2002-305626

[ST.10/C]:

[JP2002-305626]

出 願 人

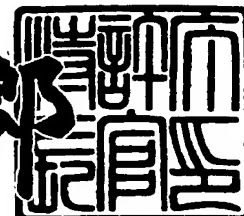
Applicant(s):

インターナショナル・ビジネス・マシーンズ・コーポレーション

2003年 2月25日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3011039

【書類名】 特許願

【整理番号】 JP9010391

【提出日】 平成14年10月21日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H05B 33/00

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県大和市下鶴間 1 6 2 3 番地 1 4 日本アイ・ビー・エム株式会社 大和事業所内

【氏名】 村山 浩二

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県大和市下鶴間 1 6 2 3 番地 1 4 日本アイ・ビー・エム株式会社 大和事業所内

【氏名】 田中 淳

【特許出願人】

【識別番号】 390009531

【氏名又は名称】 インターナショナル・ビジネス・マシーンズ・コーポレーション

【代理人】

【識別番号】 100086243

【弁理士】

【氏名又は名称】 坂口 博

【代理人】

【識別番号】 100091568

【弁理士】

【氏名又は名称】 市位 嘉宏

【代理人】

【識別番号】 100108501

【弁理士】

【氏名又は名称】 上野 剛史

【復代理人】

【識別番号】 100110607

【弁理士】

【氏名又は名称】 間山 進也

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 062651

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9706050

【包括委任状番号】 9704733

【包括委任状番号】 0207860

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 有機エレクトロ・ルミネッセンス素子、該有機エレクトロ・ルミネッセンス素子の製造方法、および有機エレクトロ・ルミネッセンス表示装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 基板と、前記基板上に形成された第 1 の電極と、前記第 1 の電極から離間して配置された第 2 の電極とを含んで構成される電極と、該電極間に形成された発光層を有する機能層と、前記第 2 の電極に含まれ前記機能層から離間して配置された緩衝層とを含む

有機 E L 素子。

【請求項 2】 前記緩衝層は、前記機能層の上端面から 2 0 n m 以下の距離に形成される、

請求項 1 に記載の有機 E L 素子。

【請求項 3】 前記緩衝層は、酸化物を含んで構成される、

請求項 1 に記載の有機 E L 素子。

【請求項 4】 前記緩衝層は、酸化アルミニウムを含んで構成される、  
請求項 1 に記載の有機 E L 素子。

【請求項 5】 前記機能層に隣接して配置され、アルカリ金属元素またはアルカリ土類金属元素を含有する層を含む、

請求項 1 に記載の有機 E L 素子。

【請求項 6】 有機 E L 素子の製造方法であって、

基板上に第 1 の電極を形成するステップと、

前記第 1 の電極上に発光層を含む機能層を形成するステップと、

前記発光層の上部に第 2 の電極を形成するステップと、

前記機能層の上端面から所定値以下の距離に緩衝層を形成するステップとを含む、

有機 E L 素子の製造方法。

【請求項 7】 前記緩衝層は、酸化物を含んで形成され、前記緩衝層を形成するステップは、前記第 2 の電極を酸化させるステップまたは前記酸化物を堆積す

るステップを含む、

請求項 6 に記載の有機 E L 素子の製造方法。

【請求項 8】 前記緩衝層は、酸化アルミニウムを含む

請求項 6 に記載の有機 E L 素子の製造方法。

【請求項 9】 前記機能層に隣接してアルカリ金属元素またはアルカリ土類金属元素を含む層を堆積させるステップを含む、

請求項 5 に記載の有機 E L 素子の製造方法。

【請求項 1 0】 基板上に形成された複数の有機 E L 素子を含んで構成される有機 E L 表示装置であって、

前記有機 E L 素子は、

前記基板に隣接した第 1 の電極と、前記第 1 の電極から離間して配置された第 2 の電極とを含んで構成される電極と、該電極間に形成された発光層を有する機能層と、前記第 2 の電極に含まれ、前記機能層から離間して配置された緩衝層とを含む、

有機 E L 表示装置。

【請求項 1 1】 前記緩衝層は、前記機能層の上端面から 2 0 n m 以下の距離に形成される、

請求項 1 0 に記載の有機 E L 表示装置。

【請求項 1 2】 前記緩衝層は、酸化物を含んで構成される、

請求項 1 0 に記載の有機 E L 表示装置。

【請求項 1 3】 前記緩衝層は、酸化アルミニウムを含んで構成される、請求項 1 0 に記載の有機 E L 表示装置。

【請求項 1 4】 前記発光層と前記第 2 の電極との間に配置されるアルカリ金属元素またはアルカリ土類金属元素を含有する層を含む、

請求項 1 0 に記載の有機 E L 表示装置。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、有機エレクトロ・ルミネッセンス（以下有機 E L と略する。）に関

し、より詳細には、ダークスポットの生成および成長を改善し、表示品質、寿命を著しく向上することを可能とした有機EL素子、該有機EL素子の製造方法、および該有機EL素子を使用した有機ELディスプレイに関する。

#### 【0002】

##### 【従来の技術】

有機EL素子は、応答速度が非常に速く自己発光素子であるため、表示装置に適用した場合には視野角も広い良好な平面型表示装置を提供できることが期待されている。このため、有機EL素子は、液晶表示装置に替わる平面型表示装置への適用が検討されている。

#### 【0003】

上述した有機EL素子を平面型表示装置に適用する場合には、液晶表示装置と同様に、アクティブ・マトリックス駆動方法を適用することができる。アクティブ・マトリックス駆動方式が適用される有機EL表示装置においては、発光構造としてトップエミッション構造またはボトムエミッション構造を採用することができることが知られている。

#### 【0004】

図11には、従来の有機EL素子の概略図を示す。図11(a)が、トップエミッション型の有機EL素子であり、図11(b)がボトムエミッション型の有機EL素子である。図11(a)に示す従来のトップエミッション型の有機EL素子100は、概ね基板102上に、Ni/Alといった材料から形成される反射性のアノード104を製膜し、その上に有機EL材料から構成される機能層106を形成する。この機能層106は、有機EL素子の特有的材料および用途に応じて種々の材料から構成され、図11(a)に示した従来例では、アノード104上には、銅フタロシアニンなどを含んで構成されるキャリア注入層108と、TPDといったキャリア輸送層110と、Alq3といった発光層112とを含んで構成されている。また、発光層112上には、透明導電膜として構成されるカソード114が堆積されている。図11(a)に示された従来例では、カソード114は、アルミニウム(Al)といった材料から構成されている。さらにカソード114と、機能層106との間には、Li、K、Ca、Mgといったイ

オン化エネルギーの小さな材料からなる薄い層 116 が形成されていて、電子の注入効率を向上させている。

#### 【0005】

また、上述した各構成要素を外部からの水分から保護するために、 $\text{SiO}_w$ 、 $\text{SiO}_x\text{N}_y$ 、 $\text{SiN}_z$  といった透明絶縁膜 118 が、カソード 114 を被覆するように堆積されていて、有機 EL 素子の信頼性を向上させる構成となっている。図 11 (a) に示したトップエミッション型の有機 EL 素子 100 においては、機能層 106 における発光は、矢線 A で示される方向へと放出される。

#### 【0006】

また、従来では、図 11 (b) に示したボトムエミッション型の構成も知られている。図 11 (b) に示した従来のボトムエミッション型の有機 EL 素子 120 は、透明な基板 122 上に、透明導電膜から構成されるアノード 124 と、このアノード 124 上に堆積された機能層 126 と、機能層 126 上に堆積された、例えば A1 といった金属から形成される反射性のカソード 128 とを含んで構成されている。機能層 126 には、上述したトップエミッション型の有機 EL 素子と同様の材料を使用することができ、機能層 126 における発光が、矢線 B で示される方向へと放出される構成とされている。

#### 【0007】

ところで、上述した有機 EL 素子には、これまでダークスポットの生成という表示品質および表示寿命に対して重大な影響を与える現象が発生することが知られている。ダークスポットとは、有機 EL 素子における発光が生じない、スポット状の欠陥をいう。このダークスポットは、生成された後、時間の経過と共に次第に成長する。このためダークスポットの存在は、有機 EL 素子の発光面積が減少し、その結果有機 EL 素子の輝度特性の劣化を生じさせ、表示性能を時間の経過と共に劣化させてしまう、という重大な不都合となっている。このダークスポットは、素子製造時に何らかの原因で形成され、経時的にスポット状の数は増大せずにその面積だけが拡大して行くということが知られている。すなわち、ダークスポットを製造時に発生させないことは、有機 EL 素子の寿命を著しく向上させ、良好な表示品質の有機 EL 素子を提供することが可能となるものと考えられ

ている。

【0008】

これまで、ダークスポットを改善するべく、種々の検討が試みられている。例えば特開平10-275682号公報では、ダークスポットを改善するべく、素子の外側に封止部を構成して、酸素や、水分によるダークスポットの成長を防止することが開示されている。しかしながら、特開平10-275682号公報では、ダークスポットの生成自体を防止するものではなく、ダークスポットが拡大しないようにすることにより、素子寿命の劣化を防止するものの、本質的にダークスポットの生成を抑制することを目的とするものではない。

【0009】

また、外部からの酸素や水の進入を防止するという試みは、特開2000-40594号公報においても開示されており、特開2000-40594号公報においては、有機EL素子上に、損傷防止膜を形成することで外部からの影響を防止することが検討されている。特開2000-40594号公報において開示された損傷防止膜は、酸素や水、あるいはプラズマによる損傷を防止し、ひいてはダークスポットの成長に対してある程度効果を有するものと考えられる。しかしながら、特開2000-40594号公報に開示の方法もダークスポットの生成を防止することについては何ら対応するものではない。

【0010】

また、これまで上述したダークスポットの生成を防止する技術は、ダークスポットが、製造時のゴミまたはアノード、カソードの堆積時の製膜の不均一性などに起因するものとし、ゴミの低減や、堆積膜の研磨などの方法を使用して対応されてきた。しかしながら、従来の対応方法では、ダークスポットの生成を完全に阻止することができるとはいえず、さらにダークスポットの生成の本質的な機能を解明することにより、より本質的にダークスポットの生成を阻止することが必要とされていた。

【0011】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は上述した従来技術の不都合に鑑みてなされたものであり、本発明は、



ダークスポットの発生を最小化することにより、ダークスポットの生成およびその後のダークスポットの成長による有機EL素子の劣化を防止し、長寿命化を達成する有機EL素子、該有機EL素子の製造方法、および該有機EL素子を含んで構成された有機EL表示装置に関する。

## 【0012】

## 【課題を解決するための手段】

本発明者らは、ダークスポットの生成機構を詳細に検討することにより、本発明に至ったものである。すなわち、本発明者らは、鋭意検討を加えた結果、ダークスポットの発生が、ゴミまたは堆積層表面の堆積の不均一性の他にも、主要な要因として、有機層－無機層界面における微細な剥離に起因するものであることが見出された。通常、有機EL素子を構成する機能層の上部には、導電性を確保するために、カソードなどの無機材料が堆積される。多くの場合、発光層といった有機膜と、金属または金属酸化物などから形成されるカソード、アノードなどの無機膜との間の密着性は、それほど良好ではなく、無機層内に蓄積される応力が、有機膜と無機膜との間の界面剥離を生じさせ、これがダークスポットを生成させることを見出した。いったん生成したダークスポットは、剥離した面に沿って酸素または水が浸透してゆくことにより、時間的な経過と共に腐食などの理由により拡大して、有機EL素子の長期信頼性を低下させることになる。

## 【0013】

本発明は、上述したダークスポットの生成を最小化した有機EL素子の構造を提供することにより、ダークスポットに関連した従来の有機EL素子の有する不都合を解決するものである。

## 【0014】

すなわち、本発明によれば、基板と、前記基板上に形成された第1の電極と、前記第1の電極から離間して配置された第2電極とを含んで構成される電極と、該電極間に形成された発光層を有する機能層と、前記第2の電極に含まれ、前記機能層から離間して配置された緩衝層とを含む

有機EL素子が提供される。

## 【0015】

本発明においては、前記緩衝層は、前記機能層の上端面から20nm以下の距離に形成されることが好ましい。本発明においては、前記緩衝層は、酸化物を含んで構成される。本発明の前記緩衝層は、酸化アルミニウムを含んで構成することができる。本発明においては、前記機能層に隣接し、アルカリ金属元素またはアルカリ土類金属元素を含有する層を含んでも良い。

## 【0016】

本発明によれば、有機EL素子の製造方法であって、  
基板上に第1の電極を形成するステップと、  
前記第1の電極上に発光層を含む機能層を形成するステップと、  
前記発光層の上部に第2の電極を形成するステップと、  
前記機能層の上端面から所定値以下の距離に緩衝層を形成するステップと  
を含む、  
有機EL素子の製造方法が提供される。

## 【0017】

本発明においては、前記緩衝層は、酸化物を含んで形成され、前記緩衝層を形成するステップは、前記第2の電極を酸化させるステップまたは前記酸化物を堆積するステップを含むことができる。本発明においては、前記緩衝層は、酸化アルミニウムを含むことができる。本発明においては、前記機能層に隣接してアルカリ金属元素またはアルカリ土類金属元素を含む層を堆積させるステップを含むことができる。

## 【0018】

本発明によれば、基板上に形成された複数の有機EL素子を含んで構成される有機EL表示装置であって、

前記有機EL素子は、

前記基板上に形成された第1の電極と、前記第1の電極から離間して配置された第2電極とを含んで構成される電極と、該電極間に形成された発光層を有する機能層と、前記第2の電極に含まれ、前記機能層から離間して配置された緩衝層と  
を含む、

有機 E L 表示装置が提供される。

【 0 0 1 9 】

本発明においては、前記緩衝層は、前記機能層の上端面から 2 0 n m 以下の距離に形成することができる。本発明においては、前記緩衝層は、酸化物を含んで構成することができる。本発明においては、前記緩衝層は、酸化アルミニウムを含んで構成することができる。本発明においては、前記機能層に隣接したアルカリ金属元素またはアルカリ土類金属元素を含有する層を含むことができる。

【 0 0 2 0 】

【発明の実施の形態】

以下本発明を図面に示した実施の形態を持って説明するが、本発明は図面に示した実施の形態に限定されるわけではない。

【 0 0 2 1 】

図 1 は、本発明の有機 E L 素子の構造を示した概略図である。図 1 に示した有機 E L 素子 1 0 は、トップエミッション型の構造として構成されており、ガラスといった基板 1 2 上に、反射性のアノード 1 4 が堆積され、その上にエレクトロ・ルミネッセンスによる発光を生成するための機能層 1 6 が堆積されている。アノードは、導電性の金属材料から形成することができ、例えば N i 、 A l 、 M o 、 C r 、 N i / A l 、またはこれらのいかなる合金でも用いることができる。また、機能層 1 6 は、図 1 に示されるように、より詳細にはキャリア注入層 1 6 a と、キャリア輸送層 1 6 b と、発光層 1 6 c とを含んで構成されている。なお、本発明の他の実施の形態においては、機能層 1 6 にはさらに別の機能を有する、例えば電子輸送層などを含ませて構成することができる。さらに図 1 に示された実施の形態においては、L i F といった材料から構成される薄い層 1 8 が発光層 1 6 c に隣接して配置されている。

【 0 0 2 2 】

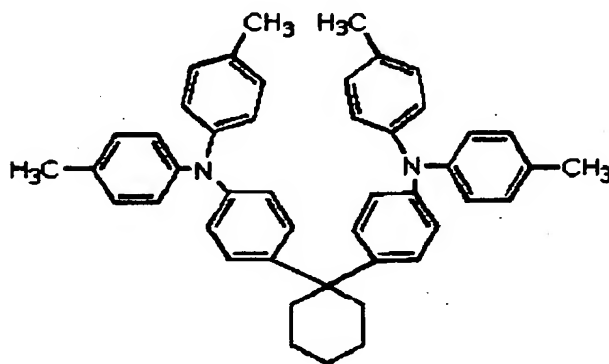
キャリア発生層 1 6 a は、例えば銅フタロシアニンなどを含んで構成することができるが、本発明においては銅フタロシアニン以外でも、例えばポルフィリンまたはその誘導体など、いかなるキャリア発生材料を使用することができる。

【 0 0 2 3 】

また、本発明において使用することができるキャリア輸送層16bとしては、本発明の特定の実施の形態では、TPDを使用することができるが、これ以外にも、これまで知られたいかなるキャリア輸送材料またはその誘導体を用いることができる。以下に本発明において使用することができるキャリア輸送材料を例示する。

【0024】

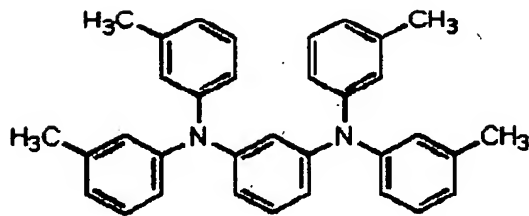
【化1】



TPAC

【0025】

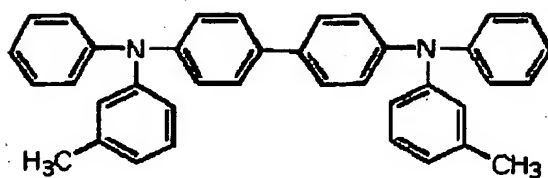
【化2】



PDA

【0026】

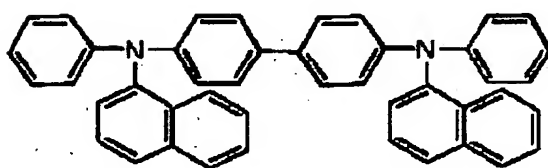
【化3】



TPD

【0027】

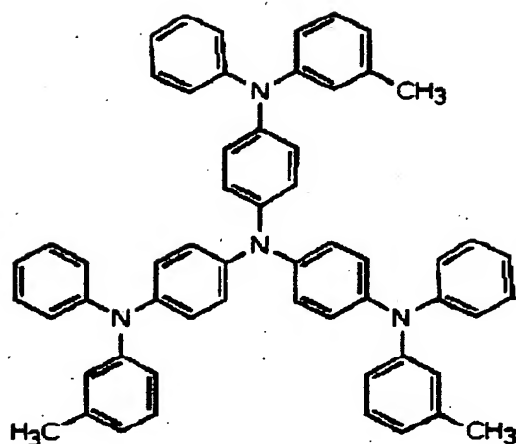
【化4】



NPB

【0028】

【化 5】



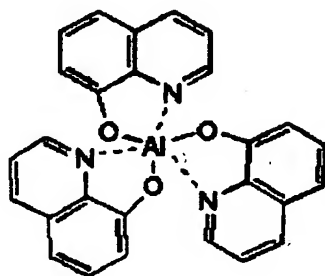
m-MTDATA

【0029】

さらに、本発明において使用することができる発光層16cとしては、例えば Alq3 といった錯体の他、これまで知られたいかなる発光性の低分子材料または高分子材料でも用いることができる。以下に本発明において使用することができる発光性の材料を例示的に記載する。低分子量の発光材料としては、下記の化合物を挙げることができる。

【0030】

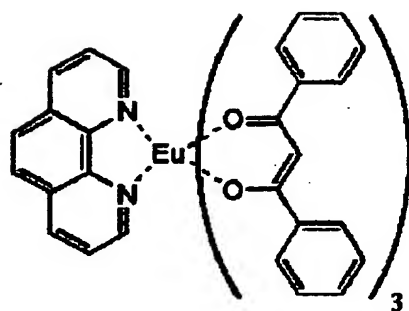
【化 6】



Alq

【0031】

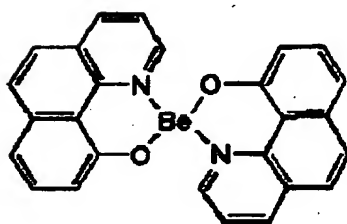
【化7】



**Eu(DBM)<sub>3</sub>(Phen)**

【0032】

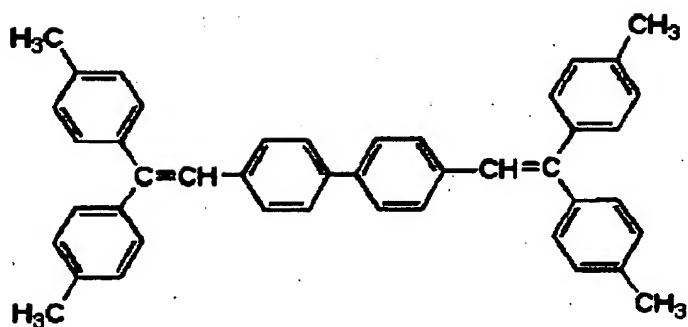
【化8】



**BeBq**

【0033】

【化9】

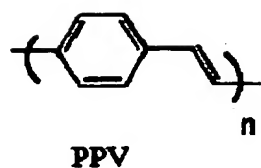


**DTVBi**

【0034】

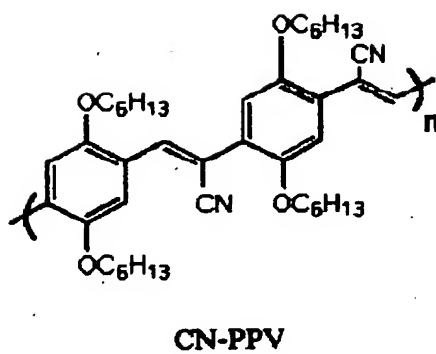
また、高分子発光材料としては、下記の化合物を挙げることができる。

【化 10】



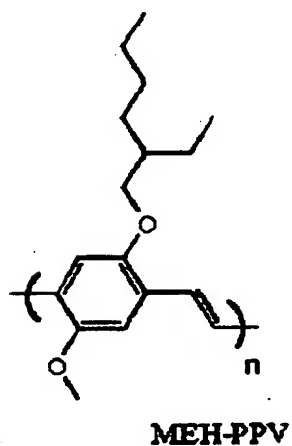
【0035】

【化 11】



【0036】

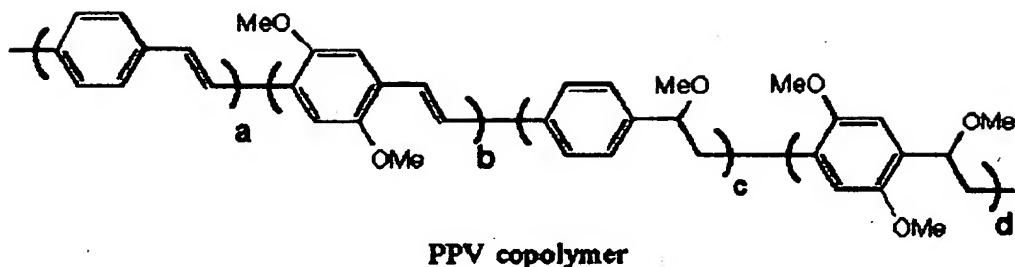
【化 12】





【0037】

【化13】



【0038】

これらの材料については、低分子材料は機能を分離して積層した構成として使用し、高分子材料は、単層で使用される構成が採用される場合が多い。しかしながら、本発明においては発光効率に応じて、種々のドーパントを添加することができ、さらに、上述した発光材料を適宜混合して使用することができる。

【0039】

上述した機能層には、種々のドーパントを発光特性を制御するために添加することができる。本発明において使用することができるドーパントとしては、必要とする発光特性を得ることができる限りいかなるドーパントでも使用することができ、例えば、昼光蛍光材料、蛍光増白剤、レーザ色素、有機シンチレータ、蛍光分析試薬用色素などから選択することができる。

【0040】

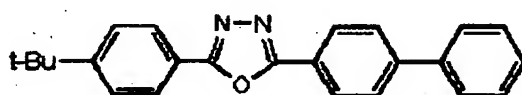
より具体的には、上述した色素としては、ナイルブルー、ナイルレッド、TPB、クマリン6、ケトクマリン、ルブレン、DCM-1（オレンジレッド）、ペリレン、p-ターフェニル、ポリフェニル1、スチルベン1、スチルベン3、クマリン2、クマリン47、クマリン102、クマリン30、ローダミン6G、ローダミンB、ローダミン700、スチリル9、HITCL、IR140などを挙げることができるが、本発明においては、これら以外にも適切な発光スペクトルを与えることができる限り、いかなる色素でも用いることができる。

【0041】

また、本発明においては必要に応じて、カソード側に電子輸送層を使用することもできる。本発明において使用することができる電子輸送層としては、下記に例示する材料を挙げることができる。

【0042】

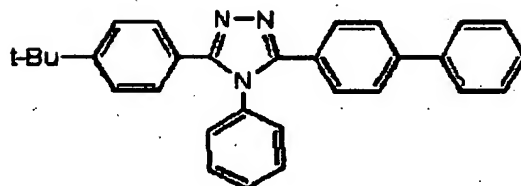
【化14】



PBD

【0043】

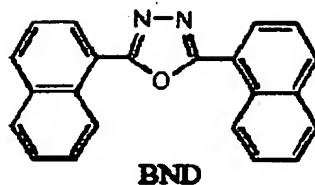
【化15】



TAZ

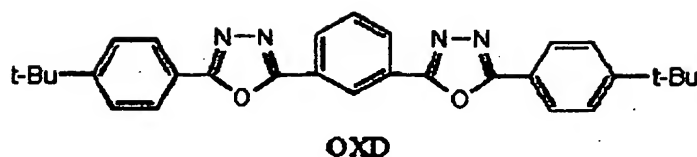
【0044】

【化 1 6】



【0 0 4 5】

【化 1 7】



で示されるオキサジアゾール化合物、またはこれまで知られたオキサジアゾール誘導体を挙げることができる。

【0 0 4 6】

本発明における特定の実施の形態において使用される薄い層 1 8 は、イオン化エネルギーの小さな、光学的に透明な材料から形成することができ、例えば Li、K、Ca、Mg などを含むアルカリ金属元素またはアルカリ土類金属元素を使用することができ、本発明の特定の実施の形態においては、LiF といったフッ化物から形成することができる。上述した薄い層 1 8 は、電子注入効率を向上させるので、特にカソード 2 0 を Al から形成する場合に好適に用いることができる。

## 【0047】

薄い層18の上には、本発明においてカソード20が形成されていて、機能層16に対して電子を供給する構成とされている。本発明の特定の実施の形態においては、カソード20は、Alから形成することができる。カソード20として使用される材料は、ボトムエミッション型の構成では、反射性であることが好ましいものの、本質的にはいかなる導電性材料でも用いることができ、例えば、Al、Ca、Sr、LiAl、Ni、Ni/Al、Cr、Ag、MgAgなどを使用することができる。さらに本発明の別の実施の形態では、カソードとしてアルカリ金属元素やアルカリ土類金属元素を含む有機導電膜を使用することができる。このような場合には、Al、ITO、Ag、Ni、Crなどの金属をといた導電膜を補助的な導電層として使用することができる。さらに、本発明においては、カソード20に隣接して緩衝層22が形成されている。この緩衝層22は、後述する保護膜により有機-無機界面に対して加えられる応力を低減させて、有機-無機界面、特に本発明の図1に示した実施の形態では、Al/機能層界面の剥離を生じさせないようにさせている。なお、本発明において有機-無機界面とは、Liを含む薄い層18が0.5nm程度と薄いため、主としてAl/機能層界面を意味する。

## 【0048】

上述した緩衝層22は、本発明の好適な実施の形態においては、発光層16cの密度、またはカソード20の密度よりも低い密度の膜として構成することができる。本発明においては、層の密度は、例えば走査型電子顕微鏡により得られた断面構造における濃淡比などを使用して決定することができる。上述した緩衝層22は、本発明の特定の実施の形態では、酸化物を含んで構成することができ、特にカソード20としてAlを使用する場合には、酸化アルミニウムとされていることが好ましい。本発明において緩衝層22は、十分に柔軟で、保護膜から加えられる応力を十分に緩衝することができるように、カソード材料よりも小さな密度を有していることが好ましい。本発明において使用される緩衝層22の膜厚は、50nm以下とすることが電子注入性を考慮すれば必要とされ、十分なキャリア輸送性を確保するためには、20nm以下の膜厚とすることが好ましく、よ

り好ましくは、0.5 nm～10 nm以下の膜厚とすることが好ましい。加えて、本発明においては、カソード20と、緩衝層22とを合計した膜厚を、20 nm以下とすることができる。

## 【0049】

すなわち、本発明においては、緩衝層22の機能層の上端面、例えば図1に示した実施の形態では発光層16cの上端面からの距離は、約20 nm以下とすることが好ましい。本発明において例えば図示しない電子輸送層などを発光層16cの上部に形成して機能層16を構成する場合には、機能層16の上端面は、電子輸送層の上端面に一致することになる。

## 【0050】

緩衝層22の上には、機能層16およびカソードなどの構成要素を、外部の水、酸素から保護するための保護膜24が形成されている。保護膜24は、光学的に十分に透明で、かつ十分な特性を付与するために、 $\text{SiO}_w$ 、 $\text{Si}_x\text{O}_y$ 、 $\text{SiN}_z$ といった材料から形成することができる。

## 【0051】

図2には、本発明の有機EL素子の別の実施の形態を示す。図2に示した有機EL素子30は、ボトムエミッション型の構成とされている。図2に示したボトムエミッション型の有機EL素子は、アノード32と、カソード34の構成を除き、図1に示した有機EL素子10と概ね同様の構成とされている。図2を使用して、本発明の別の実施の形態の有機EL素子30を説明すると、アノード32は、基板36上に堆積されていて、ボトムエミッションを可能とするべく、ITO、IZO、 $\text{SnO}_2$ といった透明導電性材料から形成されている。

## 【0052】

また、図2に示した有機EL素子のカソード34は、反射性を有するAlから形成されている。カソード34は、2段階に分割された堆積プロセスにより、カソード層34aおよびカソード層34bとして形成されている。カソード層34aの上部には、緩衝層22が、図1で説明したと同様の構成で形成されている。また、カソード34と、アノード32との間には、図1において説明した本発明の第1の実施の形態で説明したと同様の機能層16および薄い層18が形成され

ていて、有機EL素子を構成している。なお、図2に示した実施の形態においては、保護層は形成されていないものの、図1に示した実施の形態と同様に、保護層を形成して、より信頼性を向上させることもできる。

## 【0053】

図3～図4は、本発明の有機EL素子の製造方法を使用して形成される各段階の構造を示した図である。図3～図4に示した製造方法の実施の形態は、図1に示したトップエミッション構造を有する有機EL素子10を製造する実施の形態であるが、図3～図4に示した製造方法は、基板、アノードおよびカソードの材料を変更するだけで図2に示した有機EL素子30についても適用することができる。

## 【0054】

本発明の製造方法について、図3から説明すると、まず、図3(a)に示すように、ガラス、石英、熔融石英、シリコン（単結晶、多結晶）といった基板12上に、反射性の、例えばNi、Ni/Alといった材料をスパッタリングなどの方法を用いて堆積させ、パターニングしてアノード14を形成する。次いで、図3(b)に示すように隣接する導電要素と画素とを画定するために、ポリマー、 $\text{SiO}_x$ などの絶縁性材料を堆積させ、パターニング後、絶縁構造28を形成する。その後、図3(c)に示すようにキャリア発生層、キャリア輸送層、発光層を含んで構成される機能層16を、適切なマスクを使用してスパッタリングや、蒸着といった方法を使用して堆積させる。

## 【0055】

さらに、本発明の製造方法では、図4(a)に示すように、例えばLiFを含んだ薄い層18およびカソード20をスパッタリング、蒸着などの方法を使用して堆積させる。その後、図4(b)に示すようにカソード20の表面に緩衝層22を形成する。本発明における特定の実施の形態においては、緩衝層22は、製造装置内部に酸素、空気などを導入して所定時間、所定温度で放置して、カソード20の表面を酸化させることにより形成することができる。また、本発明の製造方法の別の実施の形態においては、適切な密度の緩衝層22を製造するために、例えば酸化アルミニウムなどの金属酸化物をCVD法などを使用して堆積させ

ることもできる。この際、適切な密度となるように、堆積速度を調節することができる。本発明において、緩衝層22の製造を、カソードの表面酸化を使用して行う場合には、特にマスクなどの材料を使用することなくカソード20と自己整合的に緩衝層22を形成することができるので、製造コストおよび製造プロセスを簡略化することができる。

## 【0056】

その後、緩衝層22上に $\text{SiO}_w$ 、 $\text{SiO}_x\text{N}_y$ 、 $\text{SiN}_z$ といった材料をCVD法により堆積させ、保護層24を形成して図1に示されるような本発明のトップエミッション型有機EL素子を形成する。また、保護層24を形成する前に、必要な接続を行うための図示しない導電要素を形成しておくこともできる。なお、図3～図4に示した製造方法において、アノードおよびカソードの材料を変更し、保護層24に代えてカソード材料を堆積させることにより、本発明の図2に示したボトムエミッション型有機EL素子を形成することができる。また、本発明においては、アノードが機能層から見て下側電極とされ、カソードが上側電極となる構成を使用することもできるし、アノードが機能層から見て上側電極とされ、カソードが下側電極となる構成を使用することもできる。

## 【0057】

図5は、本発明の有機EL素子または有機EL素子をアクティブマトリックス型に配置して形成した、有機EL表示装置40の構成を示した上面図である。図5に示されるように、本発明の有機EL表示装置40は、基板上に各画素42がマトリックス型に配置された、アクティブマトリックス型の配置として構成されている。各画素42には、本発明における好適な実施の形態においては、薄膜トランジスタ（以下、TFTとして参照する。）44が接続されていて、各画素ごとのスイッチング駆動を可能としている。画素42には、図1および図2に概略的な断面形状を示した機能層が堆積され、有機EL素子を構成している。画素42の間には、アクティブマトリックス駆動を行うために必要な、図示しない導電要素が形成されていて、外部から入力される制御信号に基づき、本発明の有機EL表示装置を駆動することができる構成とされている。

## 【0058】

図6は、本発明において使用することができる有機EL素子の駆動回路の一例を示す。図6では、有機EL素子は、符号50で示したダイオードとして示されている。図7に示した駆動回路の実施の形態においては、有機EL素子を駆動するための駆動回路は、スイッチング駆動を行わせるためのスイッチングTFT54と、このスイッチングTFT54により駆動され、有機EL素子50に電流を供給するためのドライバTFT52と、有機EL素子50に供給される電流を安定化させるためのキャパシタ58とを含んで構成することができる。

## 【0059】

スイッチングTFT54には、信号線56が接続されていて、駆動信号を受け取り、スイッチングTFT54を駆動し、ドライバTFT52のゲート電位を制御して、ドライバTFT52をオン/オフ駆動させている。ドライバTFT52のオン/オフ動作に対応して、有機EL素子50へと電流が供給され、本発明において使用する機能層内での発光が矢線Cで示されるように得られる。本発明において、上述した有機EL表示素子を駆動するための回路は、図6に示したものに限られず、これまで知られたいかなるものでも使用することができる。

## 【0060】

図7は、ボトムエミッション構造の図2に示した有機EL素子を使用した本発明の有機EL表示装置の1つの画素の発光特性を、図11に示した従来の有機EL表示装置の製造直後の発光特性と比較した図である。図7～図9に示した有機EL素子は、カソードとしてAlを使用した。緩衝層は、カソードの堆積後、製膜装置内に乾燥空気を導入してAl表面を空気酸化させることにより酸化アルミニウム ( $Al_2O_3$ ) を表面に形成させることにより形成した。

## 【0061】

さらにその後、再度Alを堆積させることにより、約200nmの膜厚で、中間に緩衝層を含むカソードを形成することにより、有機EL素子を構成した。このとき、緩衝層の密度は、走査型電子顕微鏡により得られた断面構造の濃度比を使用して見積もり、Al層よりも低密度であることを確認した。また、緩衝層は、発光層から約10nmの距離に、膜厚約2nm程度となるように形成した。また、カソードと発光層との間には、LiFの層を、約0.5nmの厚さで形成し



た。

【 0 0 6 2 】

図 7 ( a ) が本発明の有機 E L 表示装置の 1 つの画素の発光特性を示し、図 7 ( b ) が従来の有機 E L 素子の発光特性を示した図である。図 7 ( a ) に示されるように、本発明において製造された有機 E L 表示装置は、ダークスポットによる黒い部分は観測されず、良好な表示品質を示している。一方で、図 7 ( b ) に示した従来の有機 E L 素子は、本発明において使用した緩衝層を使用しないことを除き、成膜条件を同一にして製造したにもかかわらず、ダークスポットによる表示欠陥が生成していることが示されている。図 7 に示されたそれぞれの有機 E L 素子の製造条件は同一であることから、ダークスポットの生成が、ゴミや、電極の成膜不良よりも、有機－無機界面における残留した応力を緩和させることにより、効果的に低減することができることが示されている。

【 0 0 6 3 】

図 8 は、同一の有機 E L 素子の画素について約 3 週間後に同一の表示試験を行って得られた表示特性を示した図である。図 8 ( a ) が本発明の有機 E L 表示装置の表示特性を示し、図 8 ( b ) が、従来の有機 E L 素子の表示特性を示す。図 8 に示されるように、製造段階でダークスポットが生成していない場合には、経時的にも表示品質が維持されていることが示される。ところが、製造段階でダークスポットが生成されてしまうと、図 8 ( b ) に示されるように、経時的にダークスポット部分が拡大し、その結果、輝度低下、コントラスト低下、表示不良などの表示品質の低下を引き起こすこととなる。図 7 および図 8 に示す実施の形態に示されるように、本発明によれば、有機 E L 表示装置の表示特性の信頼性を著しく向上させることが可能となることがわかる。

【 0 0 6 4 】

図 9 は、本発明の有機 E L 表示装置の発光特性の経時的な変化を、より広い範囲で示した図である。図 9 ( a ) が製造直後の発光特性を示した図であり、図 9 ( b ) が、製造後約 3 週間を経過した後に観測した発光特性である。本発明の有機 E L 表示装置は、図 9 ( a ) に示されるように、画素の形状に沿ってコントラストの高い発光を与えている。しかも、図 9 ( b ) に示されるように、本発明の

有機 E L 表示装置は、発光特性の経時的な変化を見ても、発光特性には、経時変化はほとんどないことが示される。

## 【 0 0 6 5 】

一方、従来の有機 E L 表示装置について同様の検討を行った結果を図 1 0 に示す。図 1 0 ( a ) が製造直後の発光特性であり、図 1 0 ( b ) が製造後約 3 週間後の発光特性を示した図である。図 1 0 ( a ) に示されるように、従来の有機 E L 表示装置の発光は、製造直後であってもダークスポットに起因した暗部に加え、画素周辺部における輝度低下が観測されている。この理由としては、現時点では推測の域を出るものではないが、残留応力が画素周辺部で解放されやすく、その結果有機-無機界面の剥離が、画素の周辺部においてより発生しやすくなるものと推定している。さらに、発光特性を経時的（約 3 週間）に追跡した図 1 0 ( b ) に示した発光特性では、ダークスポットの成長に伴い、画素ごとの輝度低下が見られ、さらに画素の形状再現性も低下するなど、有機 E L 表示装置の表示特性が著しく劣化しているのが示されている。

## 【 0 0 6 6 】

上述したように、本発明によれば、ダークスポットの生成を本質的に最低化させ、表示特性の信頼性を向上した有機 E L 素子を提供することができる。さらに、本発明によれば、ダークスポットの生成を本質的に低減させることが可能な有機 E L 素子の容易、かつ低コストの製造方法を提供することができる。また、本発明によれば、表示特性の経時的な劣化を生じず、良好なコントラストで表示を長期間提供することが可能な有機 E L 表示装置を提供することができる。

## 【 0 0 6 7 】

これまで、本発明を図面に示した実施の形態をもって詳細に説明してきたが、本発明は図面に示した実施の形態に限定されるものではなく、細部の構成、有機 L E D 素子の構造、材料、製造プロセスの順などについては、同様の構成を得ることができる限り、いかなるものでも適宜適用することができる。

## 【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明のトップエミッション構成の有機 E L 素子の断面構造を示した図。

【図 2】 本発明のボトムエミッション構成の有機 E L 素子の断面構造を示した図。

【図 3】 本発明の有機 E L 素子の製造プロセスを示した図。

【図 4】 本発明の有機 E L 素子の製造プロセスを示した図。

【図 5】 本発明の有機 E L 表示装置の上面図。

【図 6】 本発明の有機 E L 表示装置の駆動回路を示した図。

【図 7】 有機 E L 表示装置の 1 画素の発光特性を示した図（製造直後）。

【図 8】 有機 E L 表示装置の 1 画素の発光特性を示した図（約 3 週間後）。

【図 9】 本発明の有機 E L 表示装置の発光特性を示した図。

【図 1 0】 従来の有機 E L 表示装置の発光特性を示した図。

【図 1 1】 従来の有機 E L 素子の断面構造を示した図。

【符号の説明】

1 0 … 有機 E L 素子

1 2 … 基板

1 4 … アノード

1 6 … 機能層

1 8 … 薄い層

2 0 … カソード

2 2 … 緩衝層

2 4 … 保護層

2 8 … 絶縁構造

3 0 … 有機 E L 素子

3 2 … アノード

3 4 … カソード

3 4 a、3 4 b … カソード層

3 6 … 基板

4 0 … 有機 E L 表示装置

4 2 … 画素

4 4 … T F T

5 0 …有機 E L 素子

5 2 …ドライバ T F T

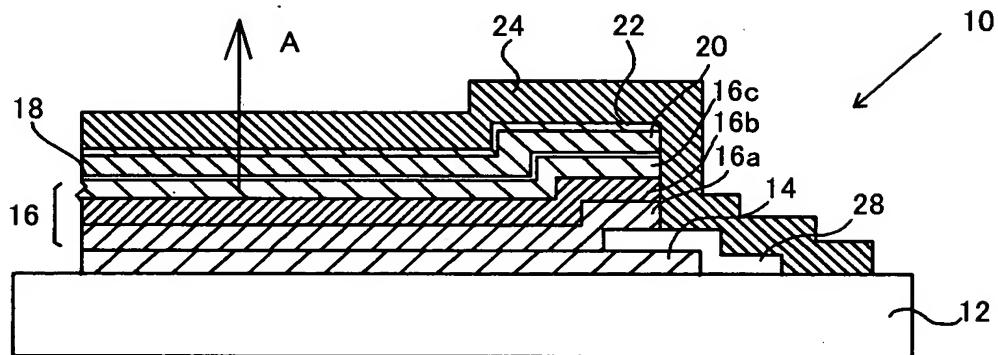
5 4 …スイッチング T F T

5 6 …信号線

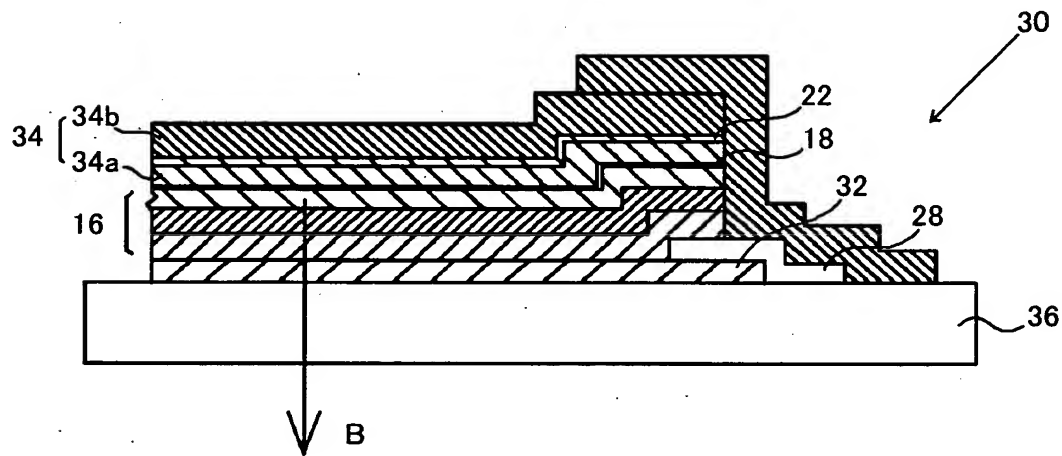
5 8 …キャパシタ

【書類名】 図面

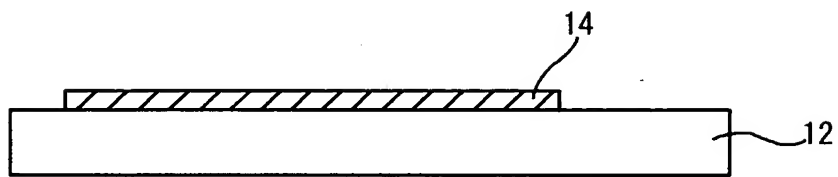
【図 1】



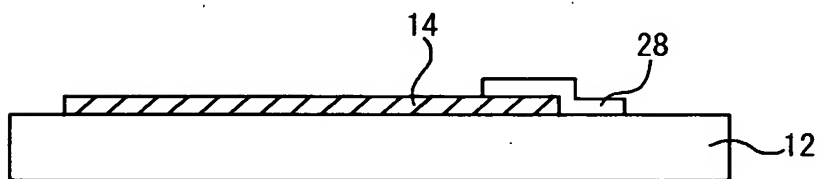
【図 2】



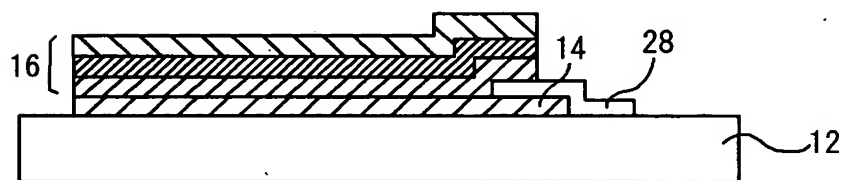
【図 3】



(a)

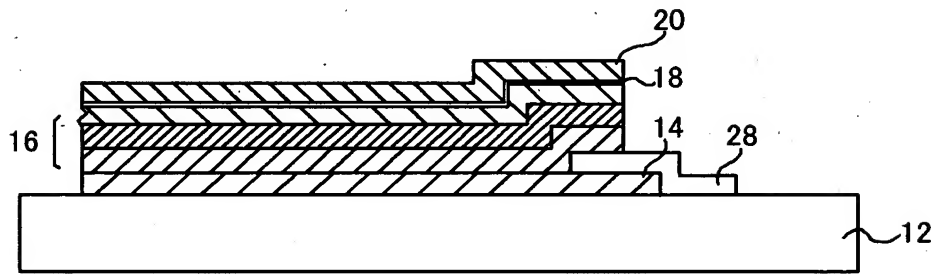


(b)

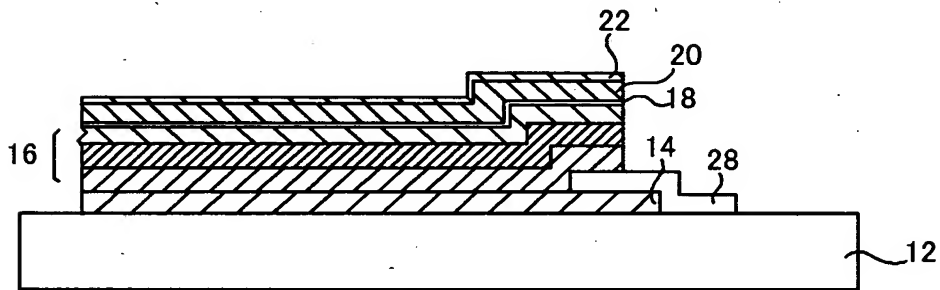


(c)

【 図 4 】

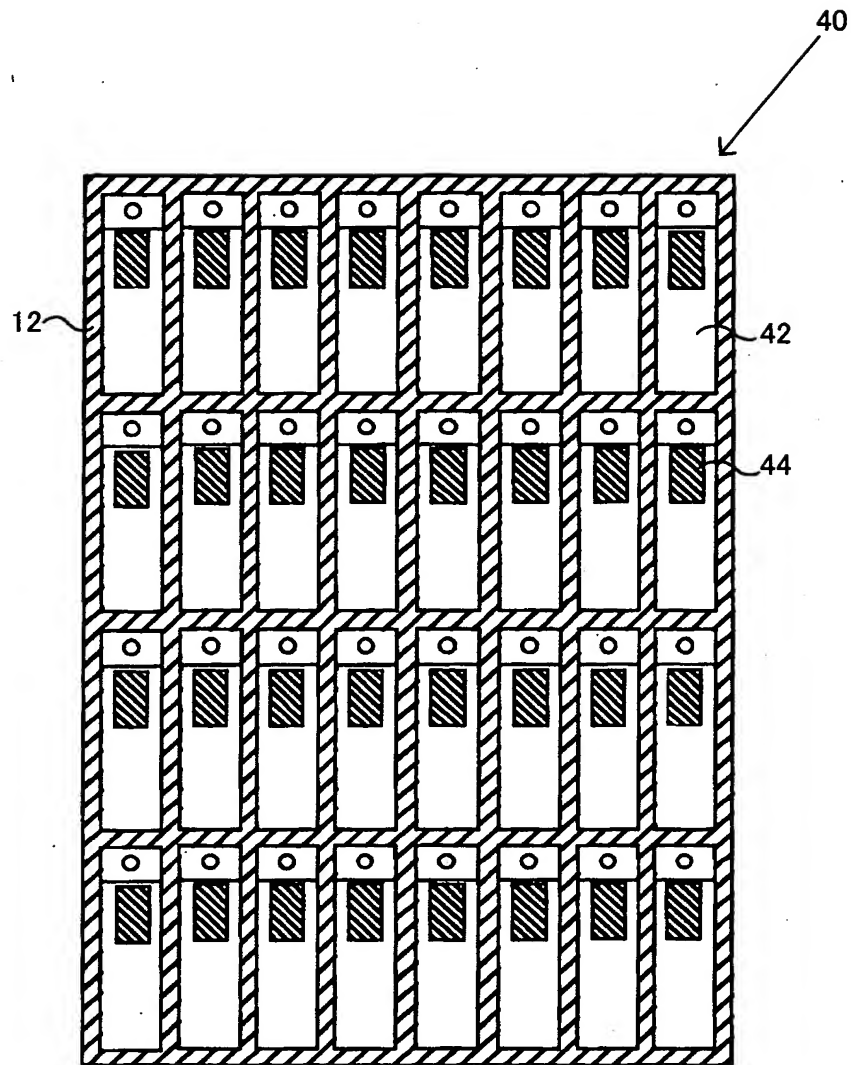


(a)



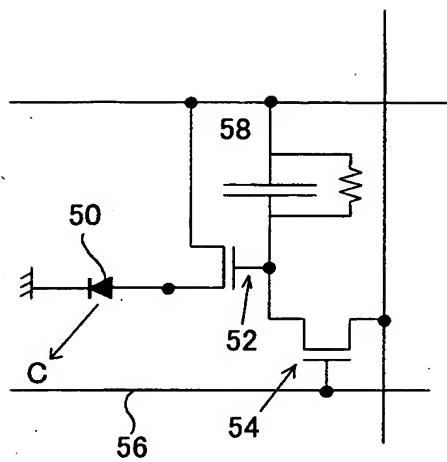
(b)

【图 5】

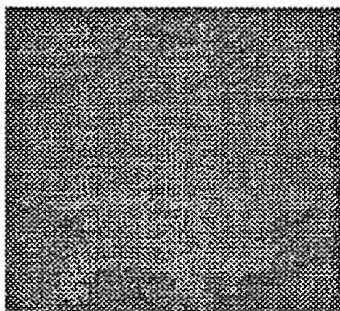




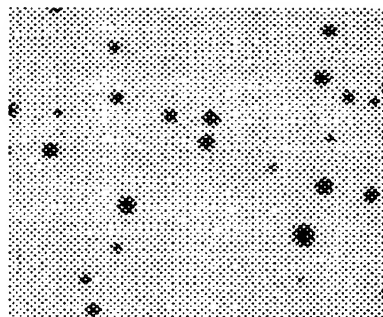
【図 6】



【図 7】

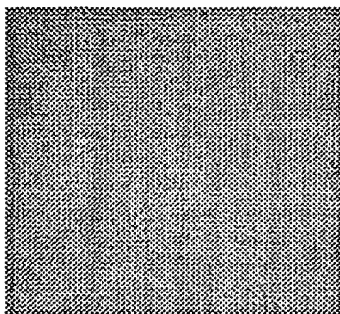


(a)

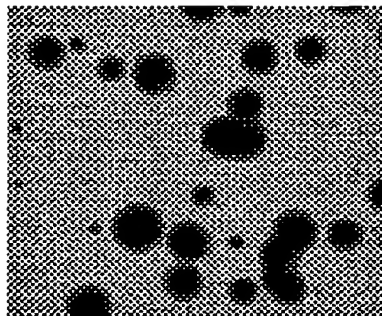


(b)

【図 8】

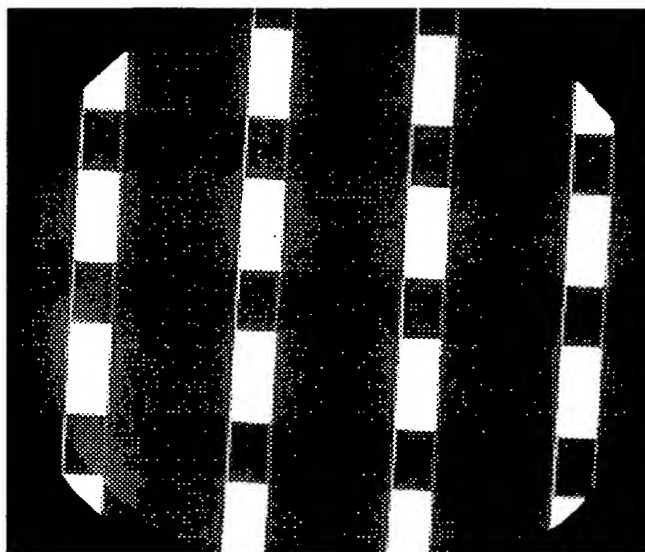


(a)

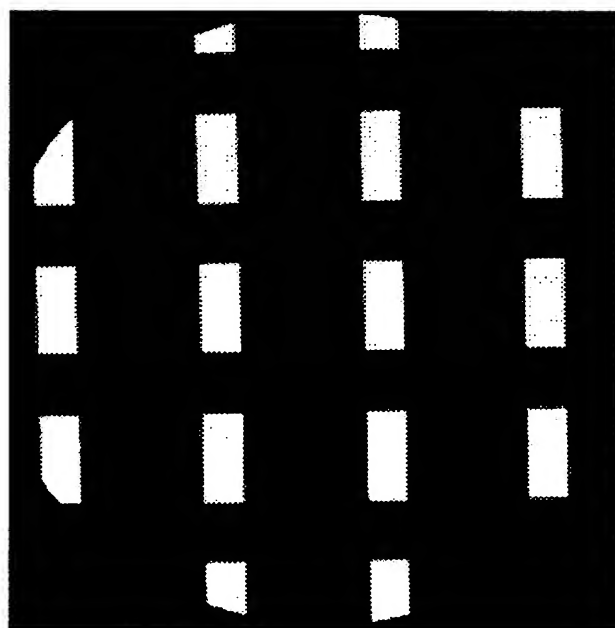


(b)

【図 9】

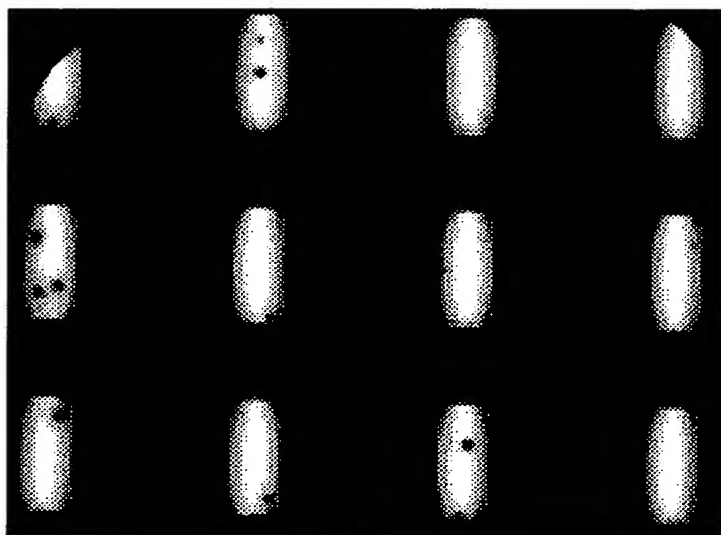


(a)

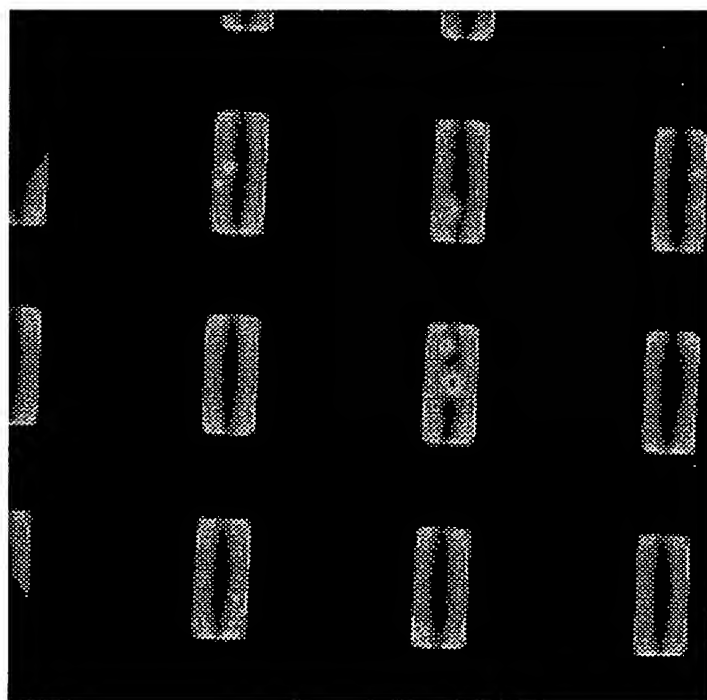


(b)

【図 1 0】

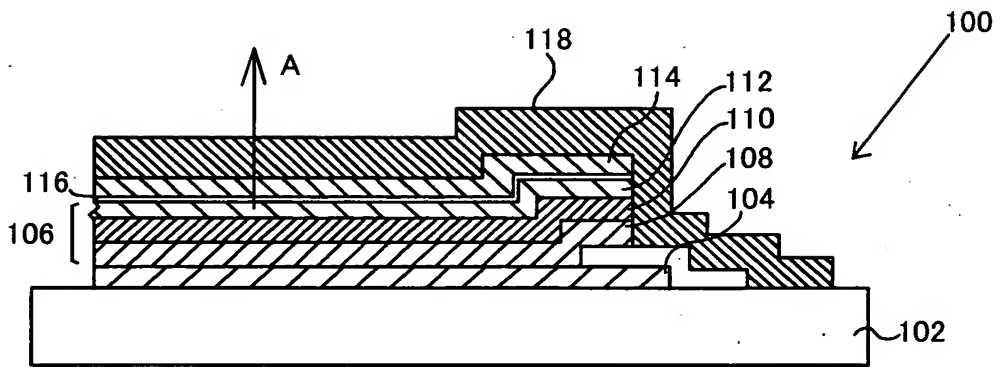


(a)

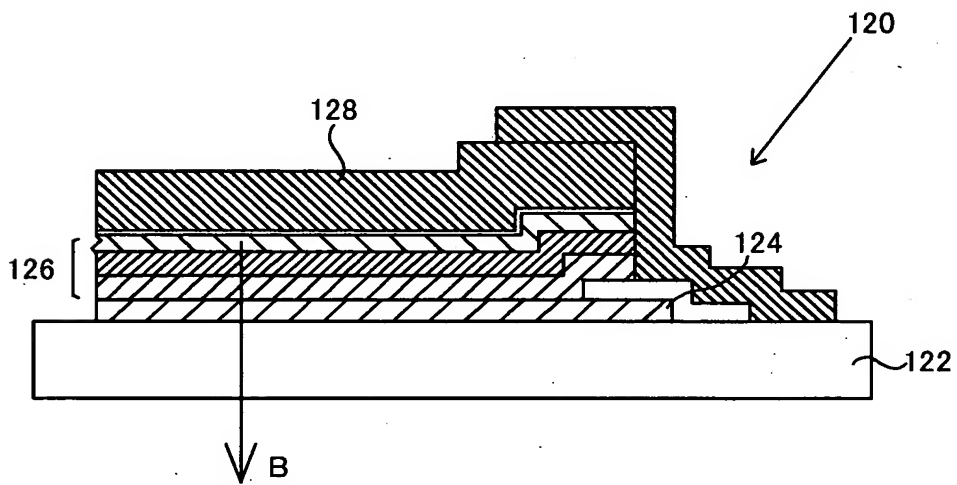


(b)

【図 1 1】



(a)



(b)

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 有機エレクトロ・ルミネッセンス素子、該有機エレクトロ・ルミネッセンス素子の製造方法、および有機エレクトロ・ルミネッセンス表示装置を提供する。

【解決手段】 本発明の有機EL素子10は、基板12と、基板12に隣接した第1の電極14と、この第1の電極14から離間して配置された第2の電極20とを含んで構成される電極と、該電極14、20の間に形成された発光層16cを有する機能層16と、第2の電極20に含まれ、機能層16から離間して配置された緩衝層22とを含んでおり、ダークスポットの生成が最低化されている。また、本発明は、上記有機EL素子の製造方法および有機EL表示装置を提供する。

【選択図】 図1

認定・付加情報

|         |                |
|---------|----------------|
| 特許出願の番号 | 特願 2002-305626 |
| 受付番号    | 50201579596    |
| 書類名     | 特許願            |
| 担当官     | 山内 孝夫 7676     |
| 作成日     | 平成14年12月 2日    |

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

|          |   |
|----------|---|
| 【識別番号】   | 390009531                                 |
| 【住所又は居所】 | アメリカ合衆国10504、ニューヨーク州 アーモンク ニュー オーチャード ロード |
| 【氏名又は名称】 | インターナショナル・ビジネス・マシーンズ・コーポレーション             |

【代理人】

|          |  |
|----------|--|
| 【識別番号】   | 100086243                                |
| 【住所又は居所】 | 神奈川県大和市下鶴間1623番地14 日本アイ・ビー・エム株式会社 大和事業所内 |
| 【氏名又は名称】 | 坂口 博                                     |

【代理人】

|          |  |
|----------|--|
| 【識別番号】   | 100091568                                |
| 【住所又は居所】 | 神奈川県大和市下鶴間1623番地14 日本アイ・ビー・エム株式会社 大和事業所内 |
| 【氏名又は名称】 | 市位 嘉宏                                    |

【代理人】

|          |  |
|----------|--|
| 【識別番号】   | 100108501                              |
| 【住所又は居所】 | 神奈川県大和市下鶴間1623番14 日本アイ・ビー・エム株式会社 知的所有権 |
| 【氏名又は名称】 | 上野 剛史                                  |

【復代理人】

|          |                                       |
|----------|---------------------------------------|
| 【識別番号】   | 100110607                             |
| 【住所又は居所】 | 神奈川県大和市中心林間3丁目4番4号 サクライビル4階 間山国際特許事務所 |
| 【氏名又は名称】 | 間山 進也                                 |

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [390009531]

1. 変更年月日 2002年 6月 3日

[変更理由] 住所変更

住 所 アメリカ合衆国10504、ニューヨーク州 アーモンク ニ  
ュー オーチャード ロード

氏 名 インターナショナル・ビジネス・マシーンズ・コーポレーショ  
ン